



TITLE:

二重鎖系における非磁性不純物まわりのソリトンスピンの局在長(基礎物理学研究所短期研究会「量子効果が顕著な役割を果たす磁性現象の新展開」,研究会報告)

AUTHOR(S):

中村, 統太

CITATION:

中村, 統太. 二重鎖系における非磁性不純物まわりのソリトンスピンの局在長(基礎物理学研究所短期研究会「量子効果が顕著な役割を果たす磁性現象の新展開」,研究会報告). 物性研究 1999, 72(6): 745-750

ISSUE DATE:

1999-09-20

URL:

<http://hdl.handle.net/2433/96708>

RIGHT:

二重鎖系における非磁性不純物まわりの ソリトンスピンの局在長¹

東北大学大学院 工学研究科 中村 統太 *

1. はじめに

近年、エネルギーギャップをもつ低次元量子反強磁性体が注目を浴びている。² 元々、これらの物質にホールをドープしたときに超伝導が発現する可能性が指摘されたことにより、様々な関連物質が合成され、それに付随して新たな興味深い実験事実が明らかになってきたことにそれは寄っている。特に無機物 spin-Peierls 物質である CuGeO_3 や梯子物質 SrCu_2O_3 の発見以降、元素の置換実験が活発になされ、本講演で取り上げる非磁性不純物問題が多くの人々の目にとまるようになった。³⁻¹⁰

これは、エネルギーギャップを持つ母体物質の磁性原子を非磁性不純物原子で置換した際、低温で反強磁性的秩序が現れる現象である。例えば、spin-Peierls 物質である CuGeO_3 の場合、Cu を非磁性の Mg で置換するとまず T_{SP} で spin-Peierls 転移をおこして格子は歪みギャップが現れるのだが、更に低温になると $T_N (< T_{SP})$ で反強磁性転移を起こす。この現象を理解するために我々は、まず母体物質に不純物を一つだけ入れたときに発生するソリトンスピンの振舞いを明らかにすることから始める。

一般に、エネルギーギャップを持つ二重鎖スピン系においては、その基底状態は各々二つの $S = 1/2$ スピンが singlet dimer pair を形成した状態になっている。その中に非磁性不純物を入れると、pair を組んでいた二つのスピンのうちの 하나가非磁性原子と置き換わるためスピンが一つ余る。便宜上、このスピンをソリトンスピンと呼ぶことにする。ソリトンスピンは局所ハミルトニアン固有状態ではないのでふらふらと動き回り、他の場所に存在する別のソリトンスピンと相互作用することによって磁性を担うものと考えられる。従って、一つのソリトンスピンの不純物原子からの局在長を求めることが出来れば、不純物濃度との兼ね合いから、相互作用発生の目安を見積もることが出来る。

本研究では、一つのソリトンの波動関数、局在長を相互作用の関数として解析的に求める。その際に近似法として dimer 変分を用いることとする。また、数値計算 (量子モンテカルロ法) を用いて、ソリトンスピン一つの場合の変分解の妥当性を検証し、さらにソリトンスピンが二つある場合の束縛状態の振舞いも明らかにする。

*E-mail: tota@camp.apph.tohoku.ac.jp

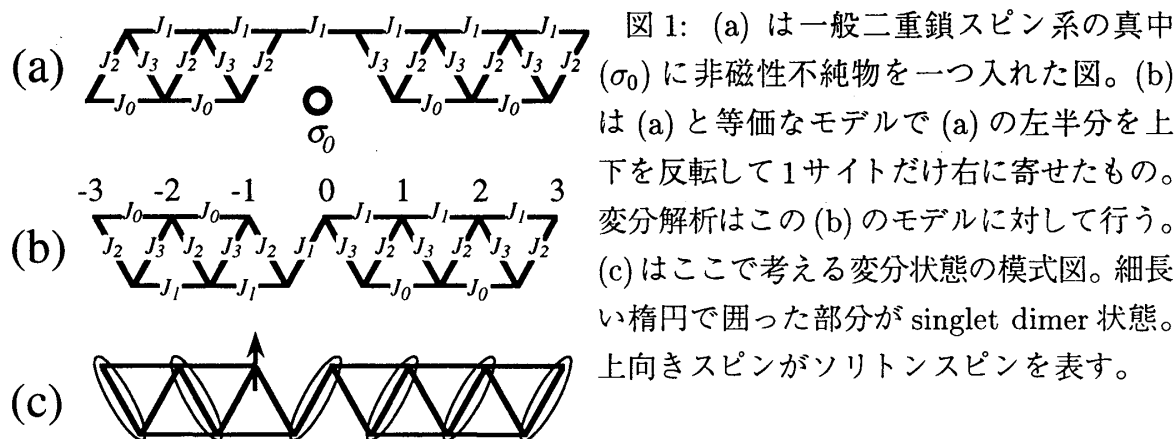
次のセクション 2 では dimer 変分を用いた解析近似解について述べ、セクション 3 では量子モンテカルロ法による数値計算について、そして最後のセクションで結論とまとめを述べることにする。

2. dimer 変分を用いた解析近似解

まず、不純物を入れる前の母体物質のモデルハミルトニアンとして以下のものを考える。

$$\mathcal{H} = \sum_{n=-N}^{N-1} (J_0 \sigma_n \cdot \sigma_{n+1} + J_1 \tau_n \cdot \tau_{n+1} + J_2 \sigma_n \cdot \tau_n + J_3 \tau_n \cdot \sigma_{n+1}) + J_2 \sigma_N \cdot \tau_N \quad (1)$$

二重鎖の鎖方向の相互作用が J_0, J_1 、その二重鎖をジグザグにつなぐ最近接相互作用が J_2, J_3 である、一般化された二重鎖スピンハミルトニアンである。境界条件は開放端とする。この系に非磁性不純物の一つ入れると、ちょうど図 1 (a) に示すようになる。この一つ原子を抜いたモデルをこれと等価なボンドを抜いたモデルに書き直したのが図 1(b) で、以後変分解析はこのモデルに対して行う。



母体物質においては、その基底状態は最近接スピン同士が singlet dimer pair を組んだ状態にあるので、その状態の一つ不純物を入れた場合にも最近接スピン間の singlet dimer 相関はまだ強く残っていると仮定する。よって、不純物を含む系の基底状態は一つのソリトンスピンと $2N$ 個の singlet dimer の直積のみでよく記述されるという仮定のもと、図 1(c) のような変分状態を考える。

まず、一つのソリトンスピンを二重鎖の上側鎖の任意の場所に置く。そのソリトンスピンを挟んで、その両側に逆位相の singlet dimer 状態 (右-dimer と左-dimer) を置いて出来る状態を変分基底 $\{\psi_i\}$ とする。基底の数はソリトンスピンの場所について、 $(2N+1)$ 個ある。ソリトンスピンの下側鎖上にある状態については、上側にある状態の線形結合 (その両側の上側格子点にソリトンスピンのある状態の差: $\psi_{i+1} - \psi_i$) で書き表せるのでここでは考慮しない。あとは、エネルギー期待値が最小になるように変分波動関数を求めれば良いだけだが、一つ注意しなければならないのは、変分基底はそのままでは各々直交してはおらず以下の関係があることである。

$$\langle \psi_i | \psi_j \rangle = \left(\frac{1}{2} \right)^{|i-j|} \rightarrow \langle \phi_k | \phi_l \rangle = \frac{3}{5-4\cos k} \delta_{k,l} + O(1/N) \quad (2)$$

つまり、実空間表示から波数表示にフーリエ変換してやると、 $N \rightarrow \infty$ の極限で基底は直交することになる。従って、ハミルトニアン of 行列要素も波数表示にしてやる。

$$\mathcal{H}_{k,k} = \left[\frac{3N(J_2 - J_3)}{5-4\cos k} + \frac{3(J_2 - J_0 - 2J_1)}{5-4\cos k} + (J_0 + J_1) + 8(J_2 - J_1 - J_0) \frac{4-5\cos k}{(5-4\cos k)^2} \right] \times \frac{3N}{8N+4} \quad (3)$$

$$\mathcal{H}_{k,l} = -\frac{3}{4} \frac{(J_2 - J_3)}{2N+1} \left[4N \frac{5\cos((k+l)N) - 4\cos((k-l)N)}{(5-4\cos k)(5-4\cos l)} + \frac{3}{2} \left(\frac{1}{5-4\cos k} + \frac{1}{5-4\cos l} \right) \frac{1-\cos((k-l)N)}{1-\cos(k-l)} \right] \quad (k \neq l) \quad (4)$$

次に、変分エネルギー最小の状態は波数 $k=0$ の空間にあると仮定して¹¹ 上記2式を k について展開し、対角項については k^2 の項まで、非対角項については leading 項までを残して後は無視することにする。そうして得られたハミルトニアンをまた再び実空間表示にもどしてやると、最終的に以下の連続極限後のハミルトニアンが得られる。

$$\mathcal{H}_C = -\frac{1}{2m} \frac{d^2}{dx^2} + \frac{3}{4}(J_2 - J_3)|x|, \quad m^{-1} = (J_0 + J_1)/2 + 9(J_2 - J_1 - J_0) \quad (5)$$

ここで、 x は不純物原子からソリトンスピンまでの距離、 m はソリトンスピンの有効質量である。あとは、Schrödinger 方程式、 $\mathcal{H}_C \Psi = E \Psi$ 、を解けばソリトンスピンに対する変分波動関数 Ψ が求まる。

$$\Psi = Ai(X - E'), \quad \text{但し} \quad X = \theta x, \quad \theta^3 = 3m(J_2 - J_3)/2, \quad E' = 2m\theta^{-2}E \simeq 2.338 \quad (6)$$

式 (5) で表されるハミルトニアンの固有状態は Airy 関数になることがよく知られており、式 (6) で記述される通りになる。Airy 関数は原点から離れて行くと指数関数的に減衰するので、ソリトンスピンは有限の局在長を持つことになる。局在長 ξ の目安として $Ai(3) \sim 0.01$ 程度であることを考慮して、

$$\xi \sim \underline{\underline{(3 + E') \times \theta^{-1} = 4.663 \times m^{-1/3} (J_2 - J_3)^{-1/3}}} \quad (7)$$

となる。 $(J_2 - J_3) = 2\delta$ (δ は bond dimerization の大きさ) であるから、ソリトンスピンの局在長は dimerization の $-1/3$ 乗に比例することになる。つまり、bond dimerization が無い場合には ξ は発散しソリトンスピンは完全なフリースピンとなって遠くのソリトンスピンと相互作用する事が出来るようになる。一方、bond dimerization が大きい場合にはソリトンスピンは不純物の周りに強く局在し、孤立して他のソリトンスピンと相互作用する可能性が小さくなる。そのような場合には、反強磁性的秩序は出来にくくなるものと思われる。

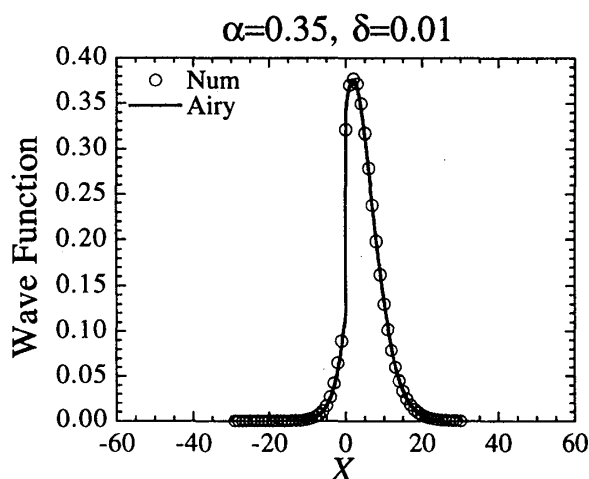


図 2(a): $J_0 = J_1 = 0.35, J_2 = 1 + \delta, J_3 = 1 - \delta, \delta = 0.01$ の時のソリトンスピンの変分波動関数。○印は元々の変分問題を数値的対角化法によって解いた結果。実線は Airy 関数による解析近似解。実は、原点において phase shift が存在するのであるが、この値は解析的に求められなかったため、この phase shift については数値解とフィットするように決めた。

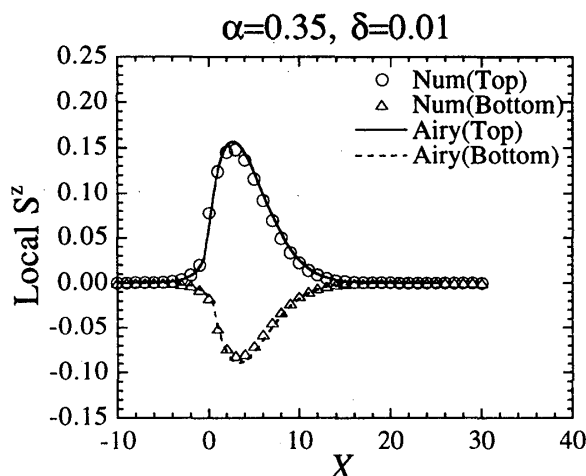


図 2(b): (a) と同じパラメータの時の局所磁化。

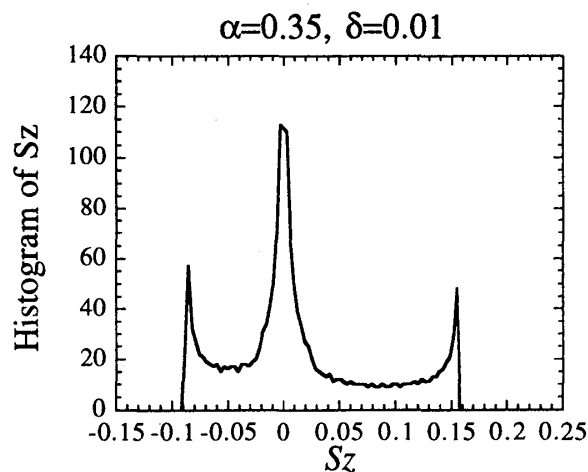


図 2(c): 同じく局所磁化の分布。

3. 量子モンテカルロ法による解析

ここでは量子モンテカルロ法によって、前節の変分計算の妥当性の検証、およびソリトンスピンの振舞いの解明を行う。通常、ここで考えるようなフラストレーションを持つスピン系に対して量子モンテカルロ法を適用するといわゆる「負符号問題」が現れて計算は困難を極める。しかし、表現基底を s_z 対角なものからスピン反転対称性をもつ dimer 基底に変更するだけで「負符号問題」が解決されることが知られている。¹² この方法を用いて非磁性不純物が系に 2 個ある場合の計算を行うことにする。不純物の位置は一つは系の真中に、もう一方は右端に置いた。両者の相対的な位置関係は、端から singlet dimer を敷き詰めていった際に、丁度余ったスピン (ソリトンスピン) が二つとも不純物の間に位置するよう偶数サイト離して置いた。

計算を実行したパラメータは図 2 の場合と同じく、 $J_0 = J_1 = 0.35, J_2 = 1 + \delta, J_3 = 1 - \delta, \delta = 0.01$ で、温度は $N = 15$ の場合は $T = 0.01$ 、 $N = 30, 50$ の場合は $T = 0.02$ とした。こ

のパラメータは spin-Peierls 物質 CuGeO_3 を意識していて、この物質中では $J \sim 120\text{K}$ であることを考慮すると、シミュレーションした温度は $T = 2.4\text{K}$ 程度に相当し、これは反強磁性転移温度 $T_N = 4\text{K}$ より低温である。ここで取り上げる3つのサイズは各々、不純物間の距離がソリトンスピンの局在長の2倍より、大きい場合、同程度の場合、小さい場合に対応しており、距離とともにソリトンスピンの振舞いがどの様になるかを見る。

測定した量は最近接スピン間の相関、 $\langle \sigma_n \cdot \tau_n \rangle$ (J_2 -bond の相関) と $\langle \tau_n \cdot \sigma_{n+1} \rangle$ (J_3 -bond の相関) の場所依存性である。これらの量は、ソリトンスピンの波動関数が存在しない領域では $J_2\text{-bond} = -0.75$, $J_3\text{-bond} = 0$ となり、逆に存在するところでは、相関の勾配がソリトンスピンの存在確率に比例する様な量になっている。また、二つのソリトンスピンが対消滅した場合には $J_2\text{-bond} = 0$, $J_3\text{-bond} = -0.75$ となる。勿論、完全 singlet dimer 状態が実現するのは Majumdar-Ghosh モデルの場合だけなので、それ以外の場合には少し鈍った値になる。どれくらい鈍るかの目安は、nonlocal unitary 変換と分子場近似を用いた解析で見積もることが出来る。¹³

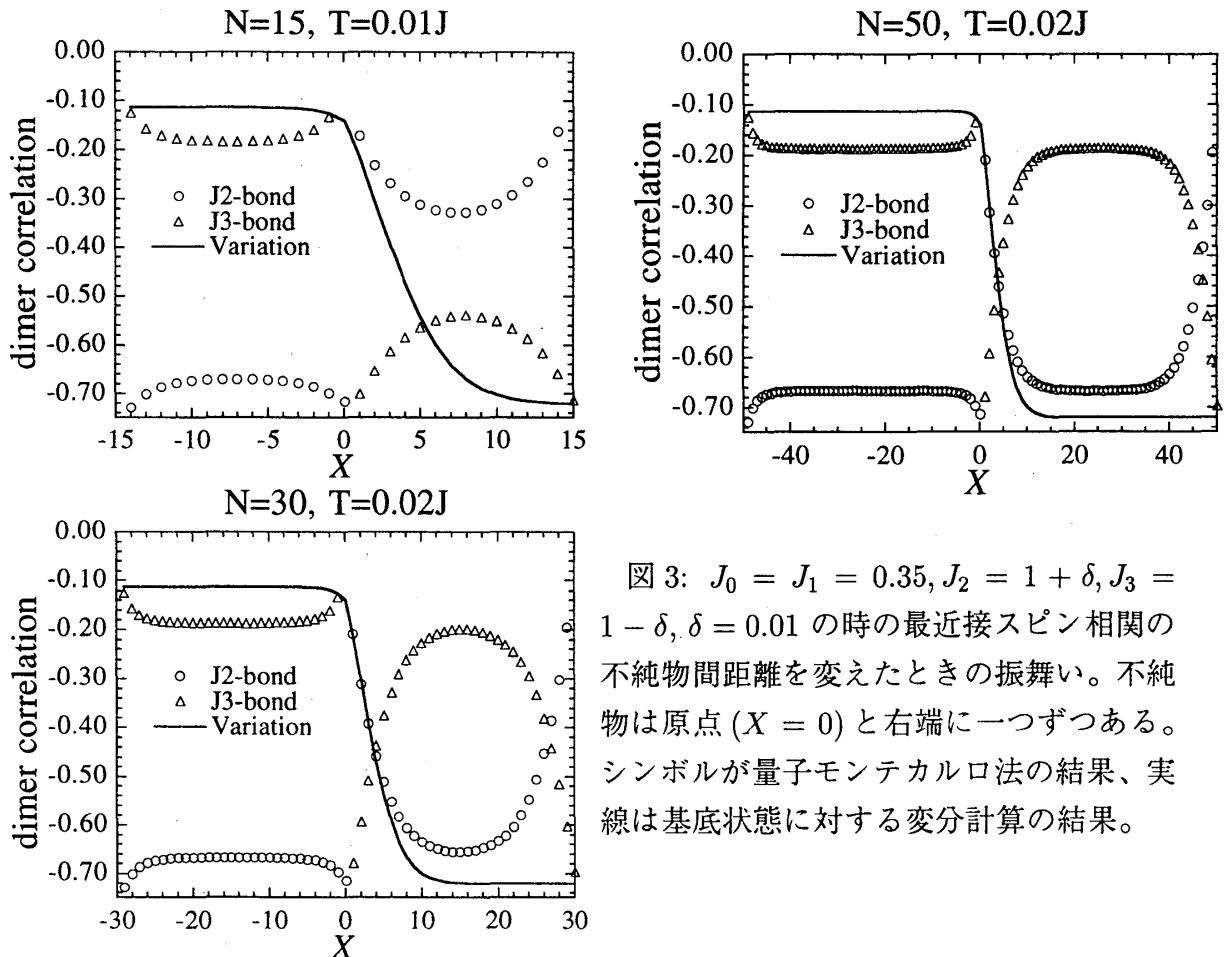


図3: $J_0 = J_1 = 0.35$, $J_2 = 1 + \delta$, $J_3 = 1 - \delta$, $\delta = 0.01$ の時の最近接スピン相関の不純物間距離を変えたときの振舞い。不純物は原点 ($X = 0$) と右端に一つずつある。シンボルが量子モンテカルロ法の結果、実線は基底状態に対する変分計算の結果。

図3に示したのが計算結果である。まず、 $X < 0$ の領域で両者が一致しないのは有限温度の影響で、基底状態に対して求めた変分計算のボンド相関よりもモンテカルロ計算の値の方が鈍っているせいである。局在長よりも不純物間距離の方が長い場合 ($N=50, 30$)、

各ソリトンスピンは完全に局在していて単一ソリトンスピンに対して求めた変分の結果とモンテカルロの結果はよい一致を示す。一方、局在長を越えて不純物が近付いた場合 ($N=15$) には両者は一致せず、どちらかという二つのソリトンスピンの対消滅した方に近い結果となっている。ここでは、二つのソリトンスピンの合体して局所 triplet を形成しそれが singlet dimer のバックグラウンド中を泳ぎ回る描像が成り立っていると思われる。

4. まとめ

以上で見て来たように、二重鎖系に非磁性不純物をドーピングしたときに現れるソリトンスピンの振舞いは孤立している場合には Airy 関数の波動関数を持つ粒子と見る事が出来る。その局在長は最近接相互作用の bond dimerization の大きさの $-1/3$ 乗で巾的に振舞う。よって、エネルギーギャップの形成に bond dimerization が主な働きをしている系ではソリトンスピンは不純物付近に強く局在し、反強磁性的長距離の形成に寄与することは出来そうもない。これとは反対のことが、フラストレーションを主要因としてギャップが形成され bond dimerization はあっても少しの寄与しかない場合には言える。ただ、現実の物質中では 3 次元的な相互作用や、フォノンの寄与など、本研究で考慮されてない自由度が支配的である可能性もあるため、「不純物問題」の解明にはそれらを取り入れた研究が必要である。

¹ 前半部分の解析近似解については、T. Nakamura, Phys. Rev. B **59**, R6589 (1999). 後半の数値計算については、T. Nakamura, and N. Kurosawa, unpublished.

² For a review, E. Dagotto, Rev. Mod. Phys. **66**, 763 (1994); E. Dagotto and T. M. Rice, Science **271**, 618 (1996).

³ M. Azuma, et al., Phys. Rev. B **55**, R8658 (1997).

⁴ N. Fujiwara, et al., Phys. Rev. Lett. **80**, 604 (1998).

⁵ M. Fischer, et al., Phys. Rev. B **57**, 7749 (1998).

⁶ M. Laukamp, et al., Phys. Rev. B **57**, 10 755 (1998).

⁷ E. Sørensen, I. Affleck, D. Augier, and D. Poilblanc, condmat/9805386 (unpublished).

⁸ D. Augier, et al., condmat/9807265 (unpublished).

⁹ M. Hase, I. Terasaki, Y. Sasago, and K. Uchinokura, Phys. Rev. Lett. **71**, 4059 (1993).

¹⁰ G. S. Uhrig, F. Schönhofeld, M. Laukamp, and E. Dagotto, Eur. Phys. J. B **7**, 67 (1999).

¹¹ $J_0 = J_1, J_2 = J_3$ の条件のもと、 $\alpha \equiv J_0/J_2 \leq \frac{9}{17}$ の時には $k = 0$ が最低エネルギー状態であることが dimer 変分の範囲内と言える。そうで無い場合の最低エネルギーを与える波数は、 $\cos k_{\text{inc}} = \frac{1}{4} \left(5 - \sqrt{9(2J_1 - J_2)/J_1} \right)$ 。式 (3) を k で微分すれば出る。

¹² T. Nakamura, Phys. Rev. B **57**, R3197 (1998).

¹³ T. Nakamura, et al., J. Phys.: Condens. Matter **9**, 6401 (1997).